

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-129327

(43) 公開日 平成11年(1999) 5月18日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	F I
B 2 9 C 55/16		B 2 9 C 55/16
C 0 8 J 5/18	CFD	C 0 8 J 5/18
// B 2 9 K 101:12		CFD
105:16		
B 2 9 L 7:00		

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願平9-300423	(71) 出願人	000003159 東レ株式会社 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号
(22) 出願日	平成9年(1997)10月31日	(72) 発明者	網島 研二 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内
		(72) 発明者	宮川 克俊 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内
		(72) 発明者	長田 俊一 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

(54) 【発明の名称】 二軸延伸フィルム

(57) 【要約】

【課題】 超平滑で凝集粒子全くのない表面の二軸延伸フィルムを生産性よく得ること。

【解決手段】 熱可塑性樹脂に表面粗面化材を添加してなる二軸延伸フィルムにおいて、該フィルムの中心線平均表面粗さ  $R_a$  (nm) と、添加した平均粒子径  $d$  (nm) とが、 $R_a \leq d/12$  なる関係を満足させる。その手段として、微細粒子を含有したフィルムをリニアモーター方式で駆動し、同時二軸延伸する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 熱可塑性樹脂に表面粗面化材を添加してなる二軸延伸フィルムにおいて、該フィルムの中心線平均表面粗さ  $R_a$  ( $\mu\text{m}$ ) と、添加した平均粒子径  $d$  ( $\mu\text{m}$ ) とが、 $R_a \leq d/12$  なる関係を満足することを特徴とする二軸延伸フィルム。

【請求項 2】 該熱可塑性樹脂からなる二軸延伸延伸フィルムの表面平均粗さ  $R_a$  が  $20$  ( $\mu\text{m}$ ) 以下であることを特徴とする請求項 1 に記載の二軸延伸フィルム。

【請求項 3】 該熱可塑性樹脂からなる二軸延伸延伸フィルムの少なくとも一方向の  $F_5$  値が  $14\text{ kg/mm}^2$  以上であることを特徴とする請求項 1～2 のいずれかに記載の二軸延伸フィルム。

【請求項 4】 熱可塑性樹脂からなる未延伸フィルムを、同時二軸延伸することにより得られたことを特徴とする請求項 1～3 のいずれかに記載の二軸延伸フィルム。

【請求項 5】 同時二軸延伸を行うテンターのクリップが、リニアモータ方式により駆動されているテンターにより延伸されたことを特徴とする請求項 1～4 のいずれかに記載の二軸延伸フィルム。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明の熱可塑性樹脂フィルムは、表面が非常に平滑であり、しかも粗大異物のない、強力化された二軸延伸フィルムに関するものであり、特に磁気記録用ベースフィルムなどに相応しいフィルムに関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 熱可塑性樹脂フィルムに表面粗面化材を添加しないで二軸延伸すると、表面が完全に平滑化して易滑性に劣り、フィルム同士が密着する、いわゆるブロッキング現象が生じ、取扱性が大きく低下するのである。かといって、比較的大きな平均径を有する粒子を添加すると、確かに易滑性には優れるようになるが、二軸延伸フィルムの表面が大きく粗面化して、特に磁気記録用ベースフィルムの様に微細な表面が要求される用途には使用出来ないのである。このために微細な粒子を添加すると、添加する粒子同士がフィルム中で凝集してこれが表面粗大突起になるのである。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、二軸延伸フィルム表面の粗さを非常に小さくして、しかも該表面に粗大突起のないフィルムを提供するものである。

## 【0004】

【課題を解決するための手段】 本発明は、熱可塑性樹脂に表面粗面化材を添加してなる二軸延伸フィルムにおいて、該フィルムの表面平均粗さ  $R_a$  ( $\mu\text{m}$ ) と、添加した平均粒子径  $d$  ( $\mu\text{m}$ ) とが、 $R_a \leq d/12$  なる関係を満足した二軸延伸フィルムを提供するものであ

る。さらに該二軸延伸延伸フィルムの表面平均粗さ  $R_a$  が  $20$  ( $\mu\text{m}$ ) 以下であり、また該二軸延伸延伸フィルムの少なくとも一方向の  $F_5$  値が  $14\text{ kg/mm}^2$  以上であるフィルムを提供するものである。

## 【0005】

【発明の実施の形態】 本発明における熱可塑性樹脂としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルペンテンなどの公知のポリオレフィン樹脂、ナイロン 6、ナイロン 66 などの公知のポリアミド樹脂、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレン-2、6-ナフタレート、ポリメチレンテレフタレート、ポリエチレン-p-オキシベンゾエート、ポリ-1,4-シクロヘキシレンジメチレンテレフタレート、および共重合成分として、例えば、ジエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、ポリアルキレングリコールなどのジオール成分や、アジピン酸、セバチン酸、フタル酸、イソフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸などのジカルボン酸成分などを共重合したポリエステルなどの公知のポリエステル樹脂、その他、ポリアセタール樹脂、ポリフェニレンスルフィド樹脂などを用いることができる。特に、本発明においては、ポリエステル樹脂を用いた場合にその効果が高く、好ましい。中でも、ポリエチレン-2,6-ナフタレートやポリエチレンテレフタレートが好ましく、特にポリエチレンテレフタレートは、安価であるため、非常に多岐にわたる用途で用いられ、応用・適用効果が高い。また、これらの樹脂はホモ樹脂であってもよく、共重合またはブレンドであってもよい。

【0006】 該熱可塑性樹脂フィルムに添加する表面粗面化材とは、添加剤を含有させることによってフィルム表面粗さが大きくなる様な添加剤である。具体的には、高分子化合物にとっては公知の各種添加剤、例えば、滑剤、ブロッキング防止剤、酸化防止剤、帯電防止剤、結晶核剤、減粘剤、熱安定剤などで代表されるような無機化合物や有機化合物などである。代表的な粗面化材としては、二酸化珪素、アルミナ、炭酸カルシウム、酸化ジルコニウム、タルク、カオリン、クリップ、硫酸バリウム、酸化チタン、架橋ポリスチレン樹脂、架橋ポリエステル樹脂、およびそれらの混合体などである。

【0007】 熱可塑性樹脂に表面粗面化材を添加したフィルムを延伸することにより、該添加剤粒子は樹脂の結晶化によってフィルムの表面に突出するようになる。この時、熱可塑性樹脂に表面粗面化材を添加しただけで延伸をしないと、該フィルム表面は無添加の場合の表面粗さとほとんど変わらない。すなわち、単に表面粗面化添加剤を添加しても延伸をしないとフィルム表面は粗面化しないのである。この時、添加した粒子の平均径  $d$  と、得られる中心線平均表面粗さ  $R_a$  ( $\mu\text{m}$ ) とは、 $R_a = (1/n) \cdot d$  なる関係式があり、 $n$  値は、延伸条件・延伸方式や、使用する熱可塑性樹脂の種類、添加する表

面粗面化材の種類などによって左右される。すなわち  $n$  がほとんど 1 に近い場合は、 $R_a$  が添加粒子径  $d$  にほぼ均しくなる場合である。この様な場合、 $R_a$  として  $20\text{ m}\mu\text{m}$  以下、好ましくは  $10\text{ m}\mu\text{m}$  以下のように微細な表面粗さが必要な時には、添加剤粒子径は  $20\text{ m}\mu\text{m}$  以下、好ましくは  $10\text{ m}\mu\text{m}$  と非常に微細な粒子で無くてはならず、この様な微細な粒子は通常凝集し易く、この様な粒子を熱可塑性樹脂に添加すると凝集粒子がフィルム表面で粗大突起になり、磁気記録材料用のベースフィルムとしてはドロップアウトなどの原因になり使用出来ないものである。逆に  $n$  が 30 以上の大きな値になる時は、表面は平滑にはなるものの、突起密度が減少してまばらな突起になり、充分な滑り特性や走行特性が得られないのである。通常行われている逐次二軸延伸方式では、その他の条件によっても異なるが、大体  $n$  は 5~10 程度である事が多い。特に近年表面平滑性が強く要求される磁気記録材料用では、 $R_a$  は  $10\text{ m}\mu\text{m}$  以下、好ましくは  $5\text{ m}\mu\text{m}$  以下と非常に平滑な表面を要求するフィルムには粗大突起が点在する事が多く、実用上問題になることが多かった。そこで  $n$  の値を 12 以上、好ましくは 15 以上、さらに好ましくは 20 以上、25 以下にするには通常の逐次二軸延伸では達成が困難であるが、この様な延伸方式として特殊な同時二軸延伸方式にすることにより達成可能であることを見出したのである。

【0008】本発明における二軸配向したフィルムとは、長手方向および幅方向に延伸し、二軸方向に分子配向を与えたフィルムを言う。延伸方式としては長手方向または幅方向に延伸した後、それと直角方向の幅方向あるいは長手方向に延伸する逐次二軸延伸方式でも、長手方向と幅方向とを同時に延伸する同時二軸延伸方式でも良いが、本発明の場合には特に同時二軸延伸方式が好ましい。同時二軸延伸とは、フィルムの長手方向、幅方向の二軸方向に同時に配向を与えるための延伸を言い、同時二軸テンターを用いて、フィルムの両端をクリップで把持しながら搬送して、長手方向および幅方向に延伸する。もちろん長手方向と幅方向との延伸が時間的に同時に延伸されている部分があれば良いのであって、したがって幅方向または長手方向に単独に先に延伸した後に、長手方向と幅方向とを同時に延伸する方法や、さらに同時二軸延伸後に幅方向または長手方向に単独にさらに延伸する方法なども含まれるのであり、本発明の場合、特に同時二軸延伸後に再延伸する方法が好ましい。この様な延伸方向や延伸倍率を自由に変更できるような同時二軸延伸機としては、同時二軸テンターのクリップが、リニアモータ方式により個別に駆動されている方式を用いるのが良い。従来までの同時二軸延伸方式は、スクリュウの溝にクリップを乗せてクリップ間隔を広げていくスクリュウ方式、パンタグラフを用いてクリップ間隔を広げていくパンタグラフ方式が用いられていた。しかし、製膜速度が遅いこと、延伸倍率などの条件変更が困難で

あることなどの問題点があったが、リニアモーターの原理を用いて、各クリップを独自に制御して、クリップ間隔を調整するリニア駆動テンターを用いると、製膜速度が、従来の逐次二軸延伸方式と変わらないところまで高めることが可能になり、さらに任意の延伸方式を取り入れることが出来るようになる。例えば、長手方向に配向の強いフィルムを製膜するためには、長手方向に多段階に延伸したり、同時二軸延伸後にさらに長手方向に延伸することも出来、さらに二軸延伸後に、熱処理工程で長手方向および/または幅方向に寸法を戻すリラックス処理が可能のために、寸法安定性の良いフィルムや、幅方向に物性のムラのない（ボーイングのない）フィルムにすることが出来る。すなわち、各クリップを個別に制御可能なクリップのリニア駆動テンターを用いることで各種優れたフィルムを生産性良く製膜することが可能となる。この様な自由な延伸形式が取れるには、フィルム端部厚みを中央部よりも 2~3 倍程度厚くしたり、端部の分子量を中央部よりも高くしておくなどの特殊な端部を有したフィルムにするなどのことが有効である。

【0009】同時二軸延伸の倍率としては、樹脂の種類により異なるが、通常それぞれの方向で 2~1.2 倍程度である。なお、延伸の後に、その歪みを除去するために、リラックス熱処理（熱固定）を行うこともしばしば行われるが、その時、延伸後直ちに熱処理するのではなく、延伸後一旦該延伸フィルムのガラス転移温度  $T_g$  以下に冷却したのち熱処理をする方が、幅方向に均一な物性を有したフィルムを得ることが出来る。なお熱処理の温度としては、延伸温度から樹脂の融点近傍までの様々な温度が用途に応じて採られる。

【0010】かくして得られる同時二軸延伸フィルムの配向の主軸を長手方向に存在させることや、両軸に配向がバランスしたフィルムの製造などは比較的容易であり、特に長手方向に強度のいる磁気記録用ベースフィルムや、感熱転写リボン用ベースフィルムなどには有利である。

【0011】次に、本発明のフィルムの製造方法について説明するが、必ずしもこれに限定されるものではない。

【0012】まず、熱可塑性樹脂に重合段階あるいは二軸押出機にて表面粗面化材を含有させた原料をペレットなどの形態で用意し、必要に応じて、事前乾燥を熱風中、あるいは真空中で行い、押出機に供給する。押出機内において、融点以上、あるいは樹脂の熱分解物やゲル化物を可能な限り小さくするために過冷却状態にして、樹脂を流動状態でフィルターを通して異物を除去し、さらにギアポンプ等を連結して樹脂の押出量の均一性を向上させ、厚みむらを低減させるのである。押出機よりダイに送られた樹脂はダイで目的の形状に成形された後、吐出される。この吐出の際の樹脂温度は、通常、融解終了温度 ( $T_m$ ) 以上である。しかし、熔融樹脂の冷却

を、タンデム押出機の二段目で冷却して過冷却状態にしたり、間隙が狭く、流速の速い部分であるダイの出口直前のランド部で冷却して過冷却状態にして押出す事により、熱分解の少ない、オリゴマーの発生が少ない、溶融膜振動の少ない厚み均質性の良いフィルムを得ることが出来る。すなわち、ダイより吐出される樹脂の温度は、通常、融解終了温度 ( $T_{me}$ ) 以上であるが、融解終了温度 ( $T_{me}$ ) 未満、降温結晶化開始温度 ( $T_{cb}$ ) を越える温度範囲の、いわゆる過冷却状態では樹脂は粘度が高く、ダイと冷却ドラム間の膜振動や外乱に対して安定であるために厚みむらの小さなフィルムを得ることができるばかりか、熱分解生成物の少ないフィルムが得られる。ダイのランド部の冷却手段としては、例えば、ランド部に冷却のための孔を設け、その中に冷媒を通す方法がある。冷媒としては、空気、または水など各種液体状の冷媒を用いることができ、冷媒の温度、流量をコントロールすることによって、所望の温度に設定することができる。さらに均温化のために水などのヒートパイプを併用する事がよい。このような押出機またはダイを用いれば、現行のフィルムの製造に用いている樹脂、装置がそのまま使える。なお  $T_{cb}$  よりも低い温度になると樹脂は結晶化し始め、押出されたフィルムの表面荒れ、押出異常、流れむらを生じたり、経時で固化し、もはや通常の押出機では押出困難となるため好ましくない。高分子の過冷却状態を利用して、融点以下であるが、液相状態で押出すことが重要である。なお、融解終了温度 ( $T_{me}$ )、降温結晶化開始温度 ( $T_{cb}$ ) は示差走査熱量計

(DSC) によって決定することができる。DSCとは熱分析で通常用いられており、物質の融解、結晶化、相転移、熱分解等の状態変化に伴う吸熱、発熱を測定する方法である。DSCにて熱可塑性樹脂の昇温時の融解温度、降温時の結晶化温度を測定する場合、公知の方法を用いることができる。この様に過冷却押出法を採用することにより、ゲル化物などの少ない、厚みムラの小さなキャストフィルムにすることにより、高い同時二軸延伸倍率の延伸が容易に可能となるばかりか、品質の均一なフィルムにもなるのである。

【0013】ダイから吐出されたシート状に静電気を印加してキャストドラム上に密着冷却固化される。この時ドラム上に  $0.1\mu\text{m}$  程度の極薄い水膜あるいは水滴を介在させておくと、ドラムへの密着力はさらに向上して、完全非晶質の、厚み均質なフィルムとなるので好ましい。なお、該熱可塑性樹脂フィルムの形状は、口金間隙などを調整して端部厚みを中央部の厚みの3倍程度に薄くしておくのが延伸性向上のためや、製膜収率向上にとって良い。さらにフィルム端部のみの分子量を高くすることにより延伸性はさらに安定するが、このために、別の押出機を用いて中央部の分子量よりも高い分子量の原料を供給して口金前あるいは口金内でフィルム端部のみに積層するように共押出しする。非晶性フィルムの延

伸が好ましいが、必要に応じて若干の結晶性、すなわち結晶化度にして  $0.5\sim 15(\%)$  の結晶化を有するフィルムにしておくことにより、熱寸法安定性の良い、また滑り性の良いフィルムが得られることがあり好ましい。このようにして得られた延伸前のキャストフィルムの長手方向の厚みむらは、 $7\%$  以下、好ましくは  $5\%$  以下で小さいほうが良い。

【0014】上記無延伸フィルムをテンターに供試して同時二軸延伸するが、単純に長手方向および幅方向に同時に延伸を開始・終了させてもよいが、該同時二軸延伸の前後に長手方向および/または幅方向に事前の延伸、または同時二軸延伸後の再延伸をしても良い。特に同時二軸延伸後に再度長手方向延伸をすることによってエッジ近傍のフィルム形状が直線的になり、縁断率が小さくなるばかりか、長手方向に強度の強い ( $F5$  値として  $14\text{kg/mm}^2$  以上)、平面性の良い、厚みむらの小さいフィルムになるので好ましい。同時二軸延伸温度は、該熱可塑性樹脂のガラス転移温度以上、(ガラス転移温度  $T_g + 100^\circ\text{C}$ ) 未満であることが好ましい。ここで、延伸がガラス転移温度  $T_g$  未満であると、フィルムが破れて延伸が不可能となってしまう。一方、(ガラス転移温度  $T_g + 100^\circ\text{C}$ ) を越えると、延伸時に分子が有効に配向できなかつたり、フィルムが破れたり、厚みむらが大きくなったりして、均一な延伸が不可能になる。

【0015】同時二軸延伸した後、フィルムを構成する樹脂のガラス転移点未満の温度まで、好ましくはガラス転移点  $-10^\circ\text{C}$  未満の温度まで冷却した後、熱寸法安定性付与のために熱処理することが好ましい。延伸後に直ちにそのままの温度で熱処理を施した場合、延伸時の応力と熱収縮応力により熱処理工程における軟化したフィルムが延伸工程に引きずり込まれ、ボーイング現象を生じ、フィルムの屈折率楕円体が歪み、その結果、幅方向の物性分布を生じる。そこで、これらのボーイング現象を避けるために、二軸延伸後に該樹脂のガラス転移点未満の温度まで一旦冷却し、延伸工程と熱処理工程の間に硬い部分を設け、それぞれの工程を分離した後に熱処理をすることにより、ボーイング現象を抑制することが可能となる。

【0016】さらに、熱処理中および後に、寸法を縮めるリラックス処理を行うことで、より高い熱寸法安定性が得られるので好ましい。ただし、熱寸法安定性を追求するあまり、高すぎる熱処理温度、また、多すぎるリラックス率の熱処理を行うと、強度・平面性などの特性の低下を引き起こすので好ましくない。

【0017】このようにして得られたフィルムは、室温まで徐冷してから、ワインダーにて巻取り、製品とする。かくして得られたフィルムは、感熱孔版用原紙、コンデンサー用原反、感熱転写リボン用原反、磁気テープ用原反などに有効である。

【0018】

## 【物性値の評価方法】

## 1. 熱特性

示差走査熱量計として、セイコー電子工業株式会社製ロボットDSC「RDC220」を用い、データ解析装置として、同社製ディスクステーション「SSC/5200」を用いて、サンプル約10mgをアルミニウム製の受皿上300℃で5分間熔融保持し、液体窒素で急冷固化した後、室温から昇温速度20℃/分で昇温した。この時観測されるガラス転移点のピーク温度を $T_g$ 、融解吸熱ピークの開始温度を $T_{mb}$ 、ピーク温度を $T_m$ 、ピーク終了温度を $T_{me}$ とした。また、サンプル5mgを300℃で5分間熔融保持した後、降温速度20℃/分で降温した。この際観測される降温結晶化発熱ピークの開始温度を $T_{cb}$ 、ピーク温度を $T_c$ 、ピーク終了温度を $T_{ce}$ とした。

【0019】2. フィルムの長手方向厚みむら  
アンリツ株式会社製フィルムシックネステスト「KG601A」および電子マイクロメータ「K306C」を用い、フィルムの縦方向に30mm幅、10m長にサンプリングしたフィルムを連続的に厚みを測定する。フィルムの搬送速度は3m/分とした。10m長での厚み最大値 $T_{max}$ ( $\mu m$ )、最小値 $T_{min}$ ( $\mu m$ )から、 $R = T_{max} - T_{min}$

を求め、 $R$ と10m長の平均厚み $T_{ave}$ ( $\mu m$ )から厚みむら(%) =  $R / T_{ave} \times 100$ として求めた。

## 【0020】3. 複屈折

ベレックコンペンセータを装備した偏光顕微鏡により、フィルムのリターデーション $R_d$ を求めた。 $R_d$ をフィルムの厚みで割り、複屈折とした。

## 【0021】4. 結晶化度

臭化ナトリウム水溶液による密度勾配管を作成し、25℃におけるフィルムの密度を測定する。この密度 $d$ から、

$$\text{結晶化度}(\%) = (d - d_a) / (d_c - d_a) \times 100$$

とした。ここで、 $d_a$ は非晶密度、 $d_c$ は完全結晶密度で、ポリエチレンテレフタレートの場合、文献値より、 $d_a = 1.335$ 、 $d_c = 1.455 \text{ g/cm}^3$ とした。

## 【0022】5. ヤング率、F5値

株式会社オリエンテック製フィルム強伸度自動測定装置MODEL AMF/RTA-100を用いて、試料幅10mm、試料長100mm、引張速度300mm/分で測定した。

## 【0023】6. 熱収縮率

フィルムを幅10mm、長さ220mmにサンプリングし、フィルム上に間隔約200mmの点を2点マーキングする。この2点の間隔を正確に測定し、 $L_0$ (mm)とする。次に、150℃に加熱された熱風オーブン中

に、このサンプルを30分間放置後、取り出して室温になるまで放置する。サンプルが完全に冷めたら、先程の2点の間隔を再度測定し、 $L$ (mm)とする。ここで、熱収縮率を、熱収縮率(%) =  $(L_0 - L) / L_0 \times 100$ とした。

【0024】7. ポリエステルの固有粘度 $[\eta]$ 

25℃で、 $\alpha$ -クロロフェノールを溶媒として次式より求めた。

$$[\eta] = 1 m [\eta_{sp}/c]$$

比粘度 $\eta_{sp}$ は、相対粘度 $\eta_r$ から1を引いたものである。 $c$ は、濃度である。単位は $dl/g$ で表わす。

【0026】8. 表面粗さ $R_a$ 

JIS B0601に従い測定した。具体的には、(株)小坂研究所製の高精度薄膜段差計ET-10を用いて、触針先端径0.5 $\mu m$ 、針圧5mg、測定長1mm、カットオフ0.08mmなる条件下で測定し算出した。

## 【0027】9. 平均粒子径

フィルムからポリマーを低温プラズマ処理法で灰化除去し、粒子を露出させる。この時の処理条件は極力粒子にはダメージを与えないようなマイルドな条件を選択する。その露出した粒子を走査型電子顕微鏡(SEM)で観察し、粒子画像をイメージアナライザーにて平均粒子径を求める。

【0028】この時観察する粒子個数は5000個以上であり、その体積分率 $n_{vi}$ から体積平均粒径 $d$ を次式により求める。

$$[\text{0029}] d = \sum d_i \cdot n_{vi}$$

## 10. 表面粗大突起

100 $cm^2$ の2枚のフィルムを重ね合わせて、5KV程度の静電気力によって空気を排除して密着させた後、2枚のフィルム間で粗大突起による光の干渉によって生じるニュートンリングから粗大突起の高さを推定し、下記 の判定基準のように3重環以上のもの(×印)を粗大突起とした。

【0030】光源はハロゲンランプに564nmのバンドパスフィルターをかける。

## 【0031】判定基準

○ : 3重環が全く認められないもの

△ : 3重環が1~2個存在するもの

× : 3重環以上の物が3個以上存在するもの

## 【0032】

【実施例】以下に、本発明をより明確に表現するために、実施例および比較例を示す。

## 【0033】実施例1~3、比較例1~3

熱可塑性樹脂として、極限粘度0.65と0.72のポリエチレンテレフタレート(PET)を用いた。極限粘度0.65のPETには、表面粗面化材として平均粒径110 $\mu m$ の球形二酸化珪素を重合時に0.5重量%添加したのものである。DSCを用いて極限粘度0.65の

ポリエチレンテレフタレート（PET）の熱特性を測定したところ、 $T_g: 69^\circ\text{C}$ 、 $T_{mb}: 240^\circ\text{C}$ 、 $T_m: 255^\circ\text{C}$ 、 $T_{me}: 268^\circ\text{C}$ 、 $T_{cb}: 203^\circ\text{C}$ 、 $T_c: 188^\circ\text{C}$ 、 $T_{ce}: 174^\circ\text{C}$ であった。それぞれのポリエチレンテレフタレートのペレットを $180^\circ\text{C}$ で3時間真空乾燥して押出機に供給し、 $285^\circ\text{C}$ で熔融状態とし、極限粘度0.72のポリエチレンテレフタレート層が成形用ダイの両端部30mmのみに位置するように幅方向に3層に積層して供給した。ダイは、リップ幅960mm、リップ間隙2mm、ランド長65mmのマニホールドダイを用いた。本ダイのランド部には、幅方向に直径7mmの空孔を各口金リップ毎に8箇所あけ、ここに空気を通すことにより冷却可能な構造としてある。ダイホッパ部の温度は $285^\circ\text{C}$ とし、ランド部には、 $25^\circ\text{C}$ の冷却空気を流量 $30000\text{ cm}^3/\text{分}$ 通して冷却した。さらに冷却を均一に行うために水で構成されたヒートパイプを3箇所ずつ挿入して均温化した。このときのダイ入口での樹脂の温度は $285^\circ\text{C}$ 、ランド部入口の樹脂温度 $280^\circ\text{C}$ 、ランド部出口での樹脂温度 $243^\circ\text{C}$ であった。この状態で樹脂を押出し、ダイから押し出された過冷却状態にあるフィルムを、2万Vの静電気を印加しながら、表面温\*

\*度 $25^\circ\text{C}$ に保たれ、かつ表層には $0.1\mu\text{m}$ 径の微細水滴で全面が覆われているキャストフィルム上に $100\text{ m/分}$ の高速で引き取り、急冷固化した。かくして得られるキャストフィルムのフィルム端部厚みは、中央部に比べて2.5倍になるように口金リップ間隙を調整した。また端部の固有粘度 $[\eta_e]$ は0.68、フィルム中央部の固有粘度 $[\eta_c]$ は0.62であった。なお、長手方向/幅方向の厚みむらは3%/4%、複屈折は0、結晶化度も0%であった。

10 【0034】該フィルムの両端をクリップで把持しながらリニア駆動テンターに導き $95^\circ\text{C}$ に加熱された雰囲気中で長手方向および幅方向にそれぞれ4.5倍ずつ同時二軸延伸し、さらに長手方向および幅方向に $105^\circ\text{C}$ で1.5倍延伸した。その後一旦 $65^\circ\text{C}$ に冷却させ、同じテンター内で $200^\circ\text{C}$ の熱処理を行い、その後均一に徐冷で室温まで冷やして巻き取り厚み $5\mu\text{m}$ の二軸配向フィルムを得た。

【0035】かくして製膜した状況、および得られた特性を表1に示した。

20 【0036】

【表1】

表1

評 価 項 目	測 定 値
表面粗さ $R_a$	$6\text{ m}\mu\text{m}$ ( $n=18$ )
F5 (長手方向)	$20\text{ kg/mm}^2$
(幅方向)	$19\text{ kg/mm}^2$
表面粗大突起	○
厚みむら(長手方向)	5%
(幅方向)	4%
収縮率( $150^\circ\text{C}$ )	
(長手方向)	0.5%
(幅方向)	0.1%

#### 比較例1

実施例1で用いた同時二軸延伸装置のかわりに逐次二軸延伸装置を用いて延伸する以外は実施例1と全く同じにして厚さ $5\mu\text{m}$ の二軸延伸フィルムを得た。

【0037】逐次二軸延伸条件は、長手方向をロール式延伸機にて $95^\circ\text{C}$ で4倍延伸した後、幅方向にはテンターで $100^\circ\text{C}$ で4.4倍延伸後、さらにロール式長手方向延伸機で長手方向に $125^\circ\text{C}$ で1.8倍延伸し、テンターで $155^\circ\text{C}$ で幅方向に1.5倍延伸後、 $200^\circ\text{C}$ で※

※熱処理した。

#### 【0038】比較例2

比較例1で使用した添加剤の粒径を $42\mu\text{m}$ の酸化珪素に変える以外は実施例1と全く同様にして厚さ $5\mu\text{m}$ の二軸延伸フィルムを得た。以上の実施例1、比較例12を続けたのが次の表2である。

【0039】

【表2】

表 2

評 価 項 目	単 位	実施例 1	比較例 1	比較例 2
添加粒子径 d	m $\mu$ m	1 1 0	1 1 0	4 2
延伸法		同時二軸	逐次二軸	逐次二軸
表面粗さ R a	m $\mu$ m	8	1 6	6
n 値		1 8	7	7
d / 1 2 値		9 . 2	9 . 2	3 . 5
F 5 (長手方向)	k g / m m <sup>2</sup>	2 0	2 0	2 0
(幅方向)	k g / m m <sup>2</sup>	1 9	1 3	1 6
表面粗大突起		○	○	×

上記の表 2 から表面の非常に平滑な表面を得ようとした場合、比較例 2 のように逐次二軸延伸法では微細な粒子を用いると粒子が凝集して表面粗大突起が発生し、比較

20 \* 実施例 1 で用いた同時二軸延伸条件の内、再度の縦および幅方向の延伸を行わない以外は実施例 1 と同じようにして厚さ 5  $\mu$  m の二軸配向フィルムを得た。これを纏めたのが次の表 3 である。

【0041】

【表 3】

【0040】実施例 2

\*

表 3

価 項 目	単 位	実施例 1	実施例 2
添加粒子径 d	m $\mu$ m	1 1 0	1 1 0
延伸法		同時二軸→再延伸	同時二軸のみ
表面粗さ R a	m $\mu$ m	6	9
n 値		1 8	1 2
d / 1 2 値		9 . 2	9 . 2
F 5 (長手方向)	k g / m m <sup>2</sup>	2 0	1 3
(幅方向)	k g / m m <sup>2</sup>	1 9	1 3
表面粗大突起		○	○

この様に同時二軸延伸後、再延伸する事により n 値が大きくなり、微細な表面を得るにも比較的大きな粒子を用いることが出来る事が判る。

【0042】

【発明の効果】以上の説明から明らかなように、本発明※

※の熱可塑性樹脂フィルムの同時二軸延伸法による製造方法は、超平滑で凝集粒子全くのない表面を得ることが出来るのみならず、生産性にも優れた製造方法を提供するものである。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>

識別記号

F I

C 0 8 L 67:00